MM
c3

Environment Canada
Environmental Protection Service

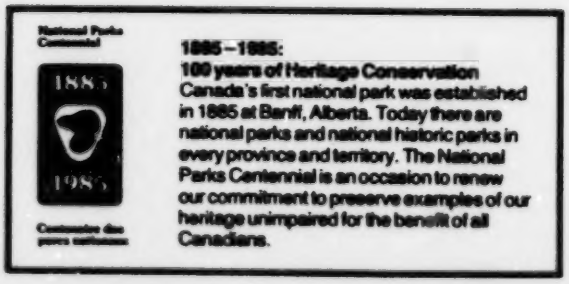
Environnement Canada
Service de la protection de l'environnement

The Atmospheric Pathway for Oxides of Nitrogen

Report EPS 2/TS/2
May 1984

Canada

1885 1985


National Parks Centennial
1885
1985
Centenaire des parcs nationaux
1885–1985:
100 years of Heritage Conservation
Canada's first national park was established in 1885 at Banff, Alberta. Today there are national parks and national historic parks in every province and territory. The National Parks Centennial is an occasion to renew our commitment to preserve examples of our heritage unimpaired for the benefit of all Canadians.

THE ATMOSPHERIC PATHWAY FOR OXIDES OF NITROGEN

R.W. Shaw
Atmospheric Environment Service
Atlantic Region
Environment Canada

Environmental Protection Service
Report EPS 2/TS/2
May 1984

NOTICE

Any comments regarding the contents of this report may be directed to:

Mr. V. Shantora
Industrial Programs Branch
Environmental Protection Programs Directorate
Environmental Protection Service
Environment Canada
Ottawa, Ontario
K1A 1C8

© Minister of Supply and Services Canada 1984
Cat. No. En 49-1/2-2E
ISBN 0-662-53057-8
BEAUREGARD PRESS LIMITED

THE ATMOSPHERIC PATHWAY FOR OXIDES OF NITROGEN

R.W. Shaw
Atmospheric Environment Service
Environment Canada

Introduction

Oxides of both sulphur and nitrogen can lead to acidification of the environment at locations well removed from the original sources of these pollutants. Although oxides of sulphur have received much attention in recent studies of the long range atmospheric transport and deposition of acidifying pollutants, nitrogen oxides (NO_x) are also important because:

a) they play a role in the production of oxidants (known to have effects upon agricultural crops);
b) their atmospheric chemistry is inextricably intertwined with that of sulphur;
c) the accumulation of nitrates in snow causes an increase in ground surface and runoff acidification during the melting of the snowpack in the spring.

The atmosphere provides the pathway from source to receptor for nitrogen oxides. This paper briefly describes what is known about the physical and chemical processes affecting nitrogen oxides along the atmospheric pathway.

Sources of Oxides of Nitrogen

The anthropogenic sources of atmospheric nitrogen oxides are high temperature combustion processes during which the nitrogen in the combustion air is oxidized. Table 1 (from MOI, 1982a) shows that, in Canada, the transportation sector accounted for about 61% of the NO_x emissions in 1980.

The geographic distribution in eastern North America of NO_x emissions is shown in Figure 1 (from Altshuller and McBean, 1978). It is not expected that the distribution has changed substantially since 1978. The density of emissions follows that of population, with maxima along the eastern seaboard of the United States, the Ohio Valley and the lower Great Lakes basin.

Atmospheric Transport and Diffusion

When any pollutant is emitted into the atmosphere, it is subjected to the physical processes of transport and diffusion. Transport is due to the mean motion of the

TABLE 1 CANADA NATIONAL CURRENT AND PROJECTED NO_x EMISSIONS (10^6 tonnes/year)[a]

	Current 1980	Projected 1990	Projected 2000
Electric Utilities	0.25	0.19	0.26
Industrial Fuel Combustion	0.30	0.30	0.33
Residential/Commercial Fuel Combustion	0.09	0.07	0.07
Non-ferrous Smelters	0.01	0.01	0.01
Other Industrial Processes[b]	0.07	0.07	0.07
Transportation	1.11	1.34	1.67
TOTAL	1.83	1.98	2.41

a Source of Projections: The projected emission estimates are based on the 1980 emissions and were developed by Environment Canada using energy consumption projections provided in National Energy Board reports. From MOI (1982a).

b Includes process emissions from petroleum refining, natural gas processing, tar sands operations, other industrial processes and miscellaneous sources.

air, or mean wind, and results in the motion of the centre of gravity of the pollutant cloud over distances which may be only a few kilometres (as in the case of short range transport) or several hundred to 2000 kilometres or more (as in the case of long range transport). Figure 2 (from Shaw, 1982) shows the mean motion of the air at a height of 1.5 km, a typical height for transport of pollutants near the earth's surface. The mean motion is from southwest to northeast, although on any given day the movement of air pollutants around travelling cyclones and anticyclones could be in any direction, resulting in a certain "smearing" of the concentrations and depositions around a source area.

Deviations of air motion about the mean wind velocity are called turbulence. Turbulence occurs in both horizontal and vertical directions. In the horizontal, turbulence can occur on scales of the size of the plume or on much smaller scales. The former scale of turbulence causes the plume to meander about its mean centreline, the small scale turbulence causes the plume to diffuse and broaden horizontally. In the vertical, the turbulence is of a scale smaller than that of the plume and has the effect of causing the vertical depth of the plume to increase with distance travelled downwind. This vertical spreading is not unlimited, however, and is almost always confined to a mixed layer next

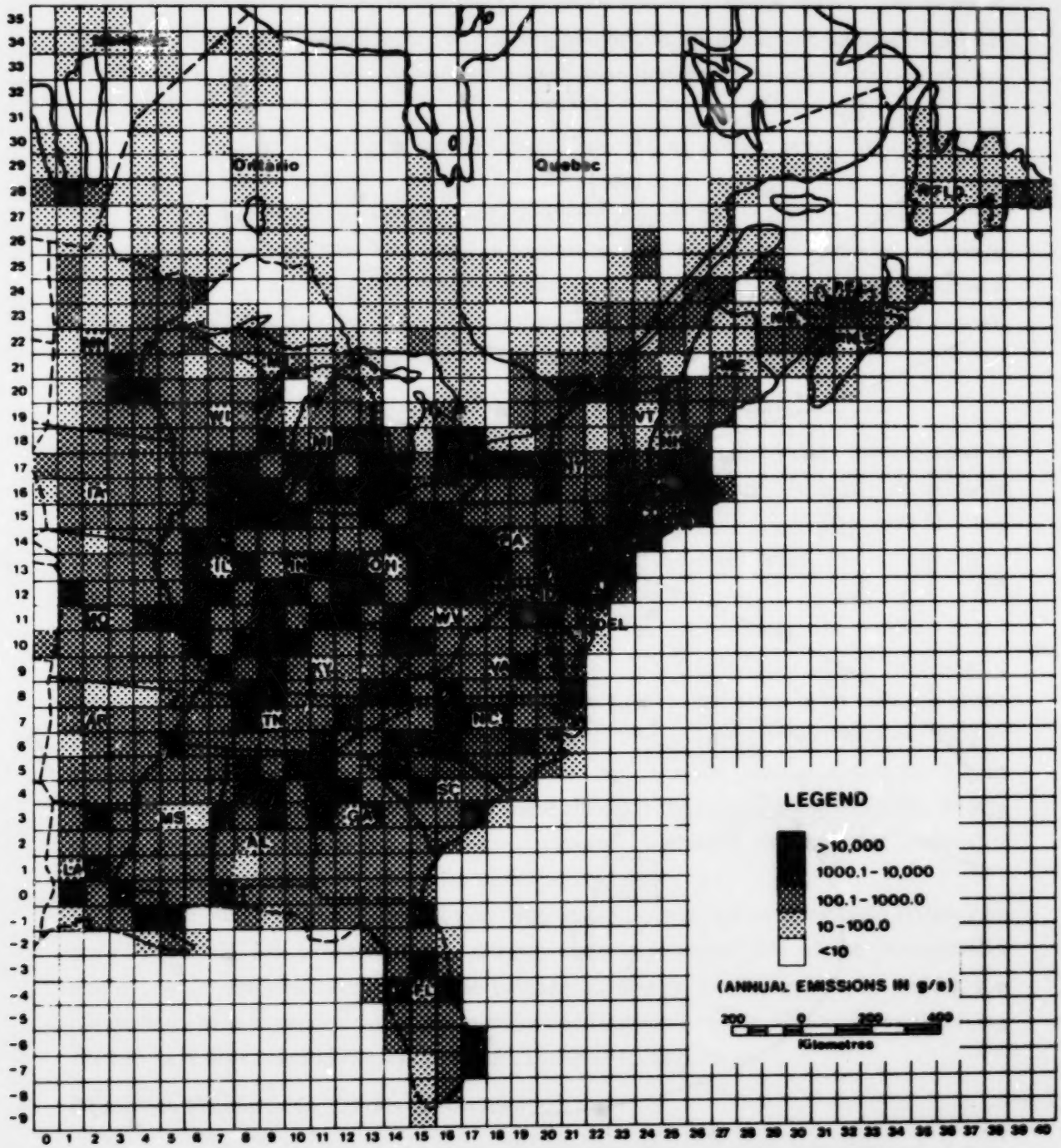


FIGURE 1 MAGNITUDE AND DISTRIBUTION OF EMISSIONS OF NITROGEN OXIDES (NO_x) IN EASTERN NORTH AMERICA (Altshuller and McBean, 1979)

Source: U.S.A. emissions from SURE II data base. Canadian emissions from Environment Canada.

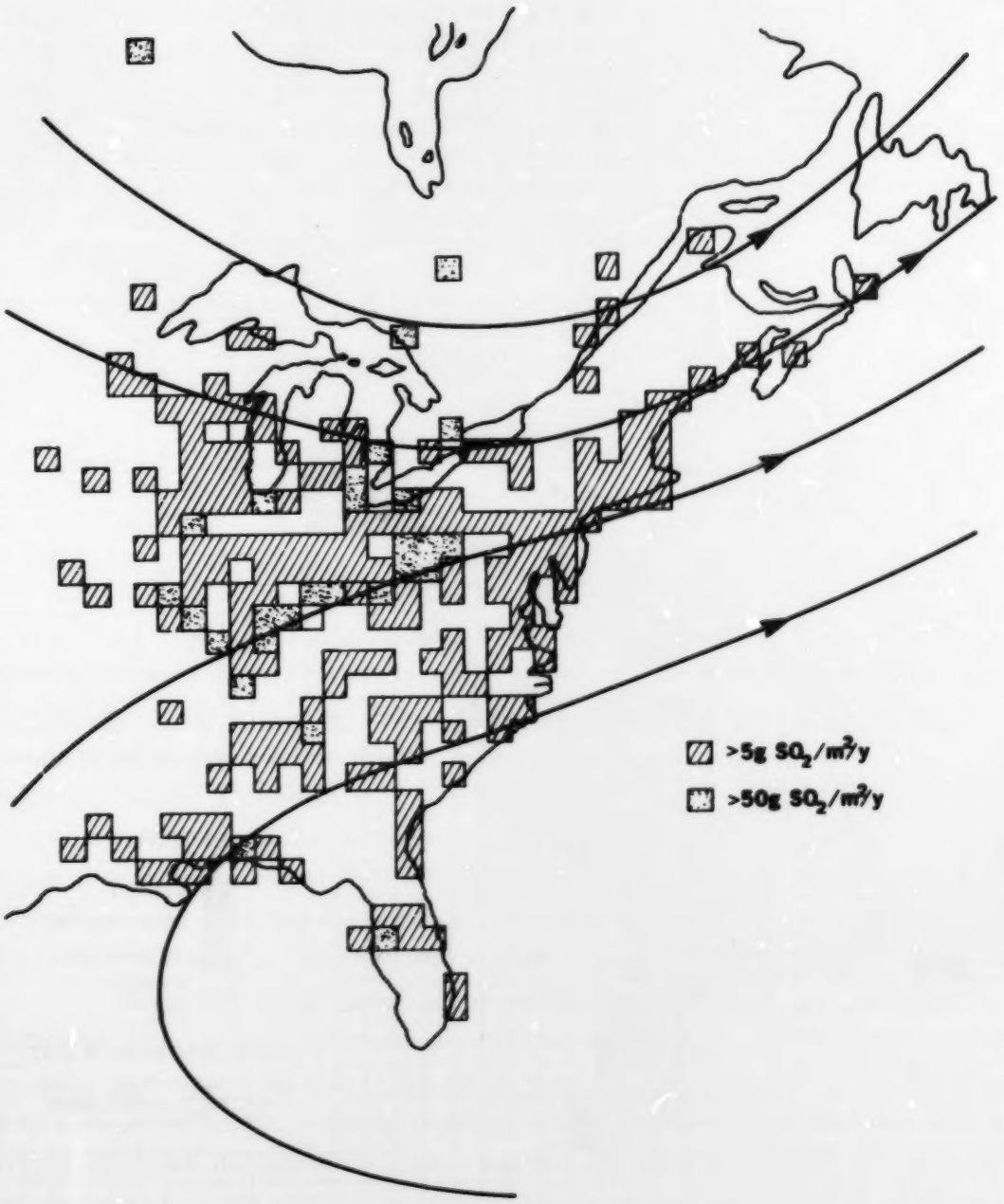


FIGURE 2 MEAN MOTION OF AIR AT 1.5 km ABOVE EARTH'S SURFACE

to the earth's surface which is capped by an inversion or a stable layer. The vertical extent of the surface mixed layer, or "mixing height", is an important parameter which directly affects the concentration of the pollutant and the rate of deposition to the surface.

Nitrogen oxides are emitted from vehicles at ground level, in contrast to industrial emissions which are released from tall stacks of up to several hundred metres in height. This factor makes vehicle emissions less subject to long range transport than industrial emissions because considerable impaction and deposition may occur relatively close to the source before the vehicle emissions are thoroughly diluted in the surface mixed layer. Consequently, changes in automobile emissions are likely to have a more localized effect than changes in industrial emissions.

Atmospheric Chemical Transformations Affecting Oxides of Nitrogen

The chemistry of NO_x in a polluted atmosphere is extremely complex and is not completely understood. It is inextricably intertwined with the chemistry of oxidants and of sulphur oxides, as shown in simplified form in Figure 3 from MOI (1982 b). The oxidant cycle on the left hand side of Figure 3 indicates that the steady-state concentration of ozone depends upon the ratio of NO_2 to NO.

The NO_2 in Figure 3 also takes part in the central loop of reactions which involve volatile organic compounds (VOCs). The NO_x-VOC cycle has a determining influence on the OH and HO_2 concentrations. The OH radical is an important gas phase (i.e., outside of cloud and rain) reactant for both SO_2 and NO_x. Furthermore, HO_2 is essential for the formation of hydrogen peroxide (H_2O_2), a very strong oxidant for SO_2 in cloud and rain droplets. It is believed by some chemists that liquid phase oxidation of SO_2 may be the dominant pathway for producing sulphate. Therefore, the NO_x-VOC chemistry has a strong influence on the oxidation of SO_2.

Finally, as mentioned above, NO_2 itself is oxidized to nitric acid (HNO_3) by the OH radical. On an annual basis, nitrates contribute about 35% of the precipitation acidity, while sulphates contribute the balance (Galloway and Dillon, 1983). During the winter months it is reported that the nitrate contribution is about 50% in areas receiving the heaviest deposition in Canada (from AES CANSAP data, 1984).

Deposition Processes for Oxides of Nitrogen

Surface deposition of acidifying pollutants can occur via diffusion and absorption in the absence of precipitation ("dry" deposition), or by precipitation ("wet"

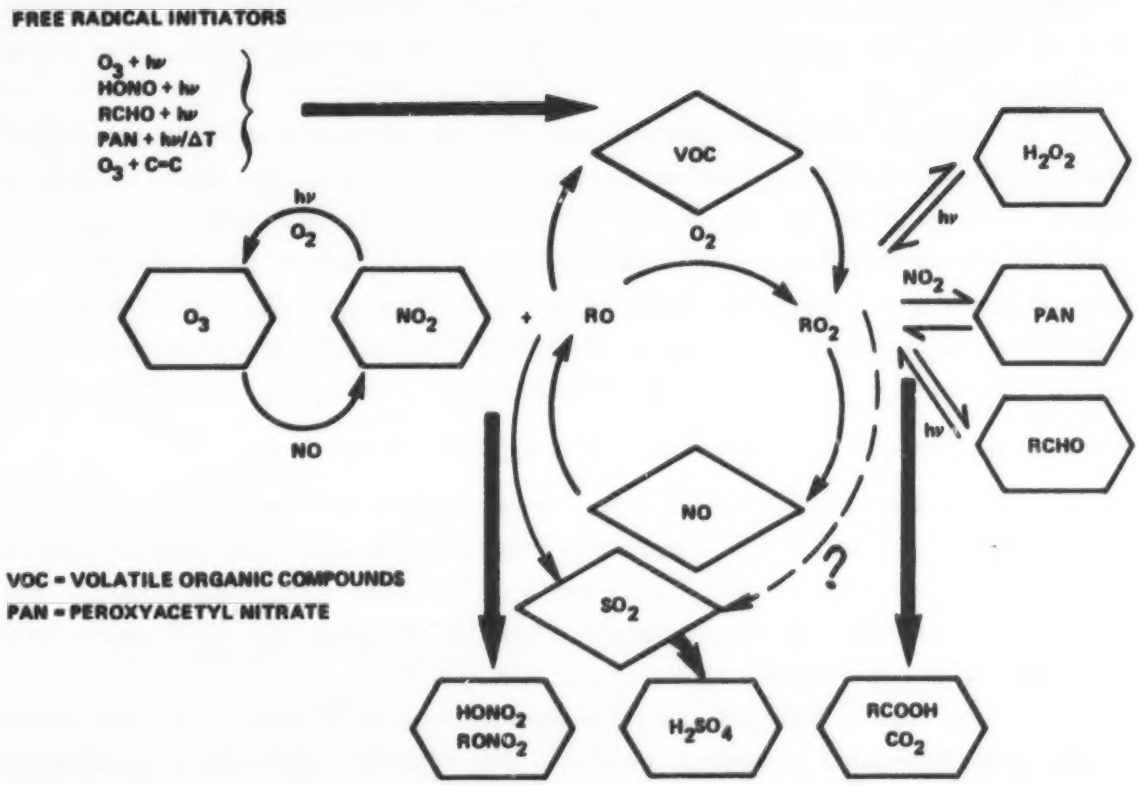


FIGURE 3 SCHEMATIC OF THE POLLUTED ATMOSPHERIC GAS-PHASE PHOTOOXIDATION CYCLE (MOI, 1982b)

deposition). The latter can be directly measured by collecting precipitation samples or can be estimated in models by multiplying the concentrations by a factor called the "scavenging coefficient". No method yet exists for directly measuring dry deposition; its flux is usually estimated by assuming it to be proportional to ambient concentration. Because of the units involved, the constant of proportionality is called the "dry deposition velocity".

Values for the scavenging coefficient and deposition velocities for NO_x are not as well known as they are for oxides of sulphur. Even for sulphur oxides, they can vary over several orders of magnitude depending upon the atmospheric stability, the type of precipitation (i.e., snow or rain) and the nature of the surface, among other things (McMahon and Denison, 1979). Therefore, it is not yet possible to make model predictions of NO_x and nitrate deposition.

Observations have been made, however, of regional patterns of nitrate deposition by precipitation as shown by Figure 4 from MOI (1982b). The pattern of wet deposition is elongated in a southwest-northeast orientation in accordance with the prevailing atmospheric flow in the lower layers. The area of maximum deposition is located somewhat downwind of strong source regions in the mid west and over strong source regions in the Lower Great Lakes region. Although the pattern is smoothed by the low density of observations and probably by "smearing" of the plumes by passing cyclones and anticyclones, there is a suggestion of an extension of the maximum toward the strong source area in the New York/New Jersey area. The close correspondence of deposition patterns to emission patterns suggests that changes in NO_x emissions manifest themselves relatively close to the source.

An approximate estimate of the contribution of NO_x emitted from light duty vehicles to wet deposition can be made as follows: light duty vehicles account for about 26% of NO_x emissions in eastern Canada (MOI, 1982a), and nitrate deposition accounts for about 35% of total acid deposition annually. Therefore, light duty vehicles account for about 9% of acid deposition from all sources. Because the nitrate contribution to deposition increases in the winter, it might be expected that the portion attributable to light duty vehicle emissions also increases.

Effects of Changing NO_x Emissions on Atmospheric Concentrations and Depositions

Models have been devised to simulate the long range atmospheric transport and deposition of sulphur compounds. These models have been moderately successful in predicting large scale patterns of the wet deposition of sulphur in North America. Despite the simplifications used in the models, such as linear processes of chemical transformation and of deposition, source-receptor matrices linking emissions in 40 source areas to wet deposition at nine receptor points have been developed (MOI, 1982b).

Opinion is divided as to whether or not the modelling is advanced enough that the source-receptor matrices can be used to separate the contributions of the various source regions to sulphur concentration and depositions at a given point. Some groups, such as the National Academy of Science in the United States, say that they are not, whereas some other workers believe that one can formulate sulphur emission control strategies based upon broad geographical areas using models (Streets et al, 1983; Shaw and Young, 1983).

No such transfer matrices exist for nitrogen oxides because of the great lack of knowledge of their rates of chemical transformation and deposition. However,

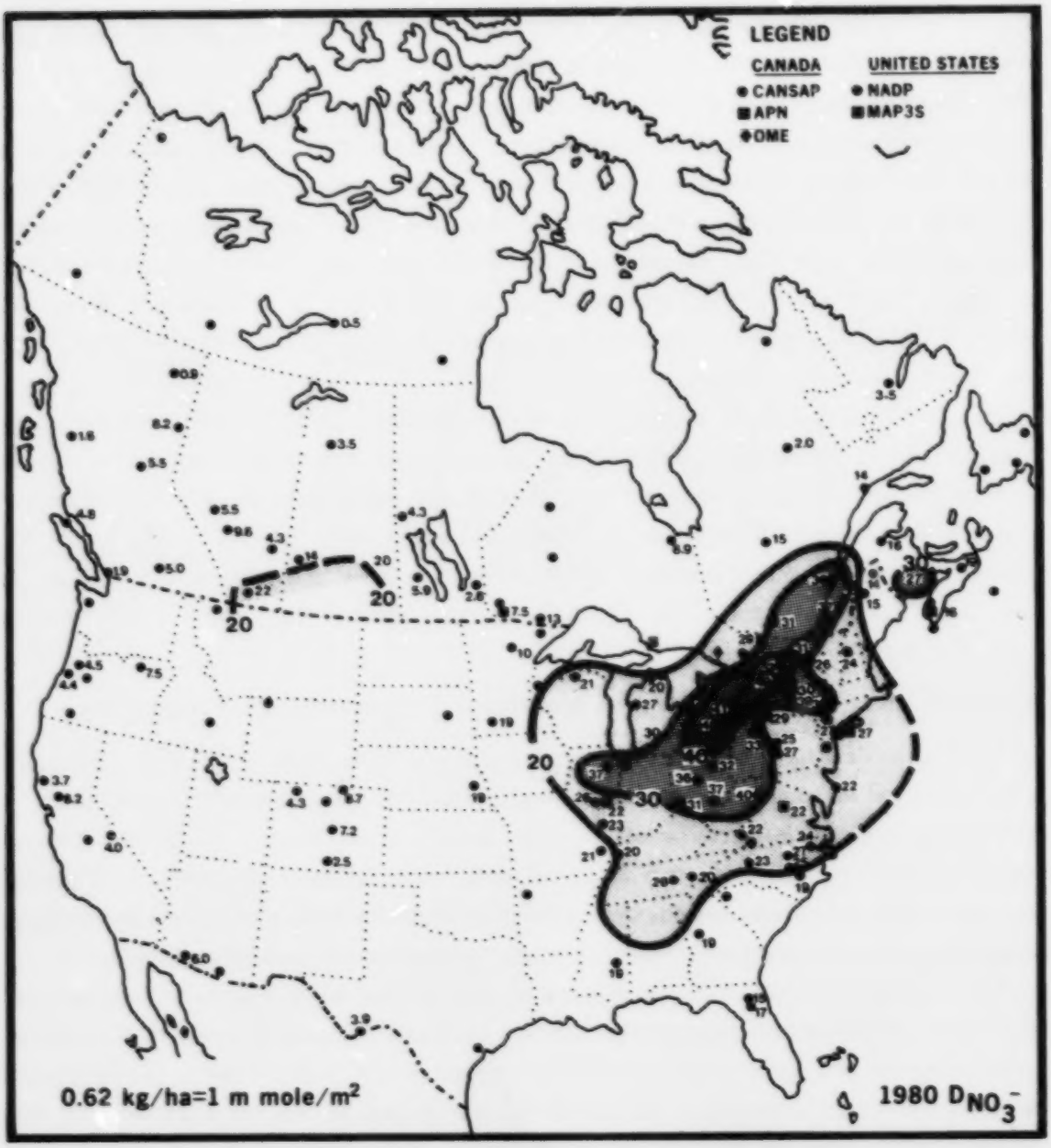


FIGURE 4 PRECIPITATION AMOUNT - WEIGHTED MEAN NITRATE ION DEPOSITION FOR 1980 (m moles per square metre). From MOI (1982b).

qualitative predictions can be made of the results of reducing NO_x emissions. These are as follows:

a) Reduction of NO_x emissions should lead to a reduction in the formation and deposition of nitric acid. The formation of nitric acid in polluted air masses is believed to occur within the first 10-15 hours of travel, whereas the formation of sulphuric acid takes place more slowly over several tens of hours (Rodhe et al, 1981; Calvert and Stockwell, 1983). The deposition patterns for nitrate ion in Figure 4 seem to be closely tied to the distribution of NO_x sources. Therefore, the reduction of NO_x emissions in Canada should lead to less deposition and storage of nitrates in snowpacks, thereby reducing the "pH shock" during the spring snowmelt in ecologically sensitive areas.

b) As stated above, the steady state concentration of ozone depends upon the ratio of NO_2 to NO. Therefore, the effect upon ozone of reducing NO_x emissions will depend upon how that ratio changes. At certain VOC/NO_2 ratios, reduction of NO_x emissions may actually increase ozone concentrations in urban areas (Innes, 1981). On a regional scale, however, decreases in NO_x emissions will probably reduce ozone concentrations in downwind rural areas (Singh, 1979).

c) The effect of a change in NO_x emissions on the production and deposition of atmospheric sulphates is difficult to predict because of the complex relationships between sulphur and nitrogen chemistry. SO_x and NO_x are both oxidized in the gas phase by the OH radical; reducing NO_x should lead to less OH formation and lower the formation rate of sulphate. On the other hand, reducing NO_x will increase the concentrations of HO_2 and the liquid-phase oxidant H_2O_2, thereby increasing the rate of formation of sulphates. Such changes in emissions would have the effect of altering the zone of deposition of sulphates rather than changing the absolute value of the amount deposited.

References

Altshuller, A.P. and McBean, G.A. (1979), The LRTAP Problem in North America: a preliminary overview. Report of the United States - Canada Research Consultation Group on the Long Range Transport of Air Pollutants.

Atmospheric Environment Service (AES), Environment Canada, CANSAP data (1984).

Calvert, J.G. and Stockwell, W.R. (1983), Acid generation in the Atmosphere by Gas-phase Chemistry. Env. Sc. Tech. 17, 428A-443A.

Galloway, J.N. and Peter J. Dillon (1983), Effects of Acid Deposition: The Importance of Nitrogen. In: Ecological Effects of Acid Deposition, National Swedish Environmental Protection Board, Stockholm, Sweden, Rept. PM 1636, pp. 145-160.

Innes, G. (1981), Effect of Nitrogen Oxide Emissions on Ozone Levels in Metropolitan Regions. Env. Sc. Tech., 15, 904.

McMahon, T.A. and Denison, P.J. (1979), Empirical Atmospheric Deposition Parameters - a survey. Atmos. Env. 13, 571-585.

MOI (1982a), Final Report of Work Group 3B on Emissions, Costs and Engineering Assessment, United States - Canada Memorandum of Intent on Trans-boundary Air Pollution.

MOI (1982b), Final Report of Work Group 2 on Atmospheric Sciences and Analysis, United States - Canada Memorandum of Intent on Transboundary Air Pollution.

Rodhe, H., Crutzen, P. and Vanderpol, A. (1981), Formation of Sulfuric and Nitric Acid During Long Range Transport. Tellus 33, 132-141.

Shaw, R.W. (1982), The Atmosphere as Delivery Vehicle and Reaction Chamber. Ann Arbor Science (in press).

Shaw, R.W. and Young, J.W.S. (1983), An Investigation of the Assumptions of Linear Chemistry and Super Position in LRTAP Models. Atmos. Env. (in press).

Singh, H.B. (1979), Survey of the Role of NO_x in Non-Urban Ozone Formation. Report 450/4-79-035, U.S. Environmental Protection Agency.

Streets, D.G. Rundson, D.A., and Shannon, J.D. (1983), Selected Strategies to Reduce Acid Deposition in the U.S. Env. Sc. Tech. 17, 474A-485A.

Environnement Canada
Service de la protection de l'environnement

Environment Canada
Environmental Protection Service

Le transport des oxides d'azote dans l'atmosphère

Rapport SPE 2/TS/2
Mai 1984

Canada

1885 1985

85-0025/

Centenaire des parcs nationaux

1885
1985

National Parks Centennial

1885–1985: 100 ans de conservation du patrimoine

Le premier parc national du Canada a été aménagé en 1885, à Banff en Alberta. Aujourd'hui il y a des parcs nationaux et des parcs historiques nationaux dans chaque province et territoire. Le centenaire des parcs nationaux représente l'occasion de réaffirmer le désir de préserver notre patrimoine au profit de tous les Canadiens.

LE TRANSPORT DES OXYDES D'AZOTE DANS L'ATMOSPHÈRE

R.W. Shaw

Service de l'environnement atmosphérique
Environnement Canada
Région de l'Atlantique

Service de la protection de l'environnement
Rapport EPS 2/TS/2
Mai 1984

AVIS

Tout commentaire relatif au présent rapport doit être adressé à:

M. V. Shantora
Direction des programmes industriels
Direction générale des programmes de protection
de l'environnement
Service de la protection de l'environnement
Environnement Canada
Ottawa (Ontario)
K1A 1C8

© Ministre des Approvisionnements et Services Canada 1984
N° de cat. En 49-1/2-2F
ISBN 0-662-53057-8
IMPRIMERIE BEAUREGARD LIMITÉE

LE TRANSPORT DES OXYDES D'AZOTE DANS L'ATMOSPHÈRE

R.W. Shaw

Service de l'environnement atmosphérique
Environnement Canada
Région de l'Atlantique
Darmouth (Nouvelle-Écosse)

Introduction

Le transport à distance des oxydes d'azote et de soufre peut causer l'acidification de l'environnement dans des régions souvent très éloignées de la source d'émission. Bien que l'attention ait été particulièrement attirée par des études récentes sur le transport à distance des oxydes de soufre et sur les dépôts de polluants acidifiants, l'importance des oxydes d'azote (NO_x) mérite aussi d'être soulignée pour les raisons suivantes:

a) L'influence qu'ont les oxydes d'azote sur la formation d'oxydants nocifs, notamment sur les cultures agricoles.
b) Leur comportement chimique est étroitement lié à celui du soufre.
c) Lors de la fonte des neiges au printemps, les nitrates accumulés dans le manteau nival provoque un "choc acide" au niveau du sol et dans les eaux de ruissellement.

Ce court exposé décrit les processus physiques et chimiques auxquels sont soumis les oxydes d'azote pendant leur transport dans l'atmosphère à partir des sources d'émission jusqu'aux régions réceptrices.

Les sources d'émission des oxydes d'azote

Les oxydes d'azote proviennent des procédés de combustion à température élevée au cours desquels l'azote de l'air de combustion est oxydé. Le tableau 1 (MOI, 1982a) indique que, en 1980, le secteur du transport a émis environ 61 p. 100 des NO_x au Canada.

La figure 1 montre la répartition géographique des émissions de NO_x de l'Est de l'Amérique du Nord (Altshuller et McBean, 1978). On estime que cette répartition n'a pas changé de façon notable depuis 1978. La masse volumique des émissions est proportionnelle à la population et des maximums sont observés le long de la côte est des États-Unis, dans la vallée de l'Ohio ainsi que dans le bassin inférieur des Grands lacs.

TABLEAU 1 ÉMISSIONS ACTUELLES ET PRÉVUES DE NO_x AU CANADA (10^6t/a)*

	Émissions actuelles 1980	Émissions prévues 1990	Émissions prévues 2000
Centrales thermiques	0,25	0,19	0,26
Industries	0,30	0,30	0,33
Commerces et résidences	0,09	0,07	0,07
Fonderies de métaux non-ferreux	0,01	0,01	0,01
Autres procédés industriels**	0,07	0,07	0,07
Transports	1,11	1,34	1,67
TOTAL	1,83	1,98	2,41

* Les émissions prévues sont basées sur les données de 1980. Elles ont été établies par Environnement Canada à l'aide des prévisions de consommation d'énergie tirées des rapports de l'Office national de l'énergie (MOI, 1982a).

** Sont incluent les émissions des raffineries de pétrole, des procédés de traitement du gaz naturel et d'exploitation des sables asphaltiques ainsi que toutes autres sources d'émission industrielles.

Transport et diffusion des polluants dans l'atmosphère

Le transport et la diffusion des polluants dans l'atmosphère sont régis par les lois de la physique. Le centre de gravité du nuage de polluant se déplace en fonction de l'écoulement moyen de l'air sur des distances allant de quelques kilomètres à plusieurs centaines ou milliers de kilomètres (2000 km ou plus). La figure 2 (Shaw, 1982) montre la circulation générale de l'air (vent moyen) à une hauteur type de 1,5 km à laquelle se déroule généralement le transport des polluants. Les polluants se déplacent dans le sens de cette circulation générale, c'est-à-dire du sud-ouest vers le nord-est, bien que dans des

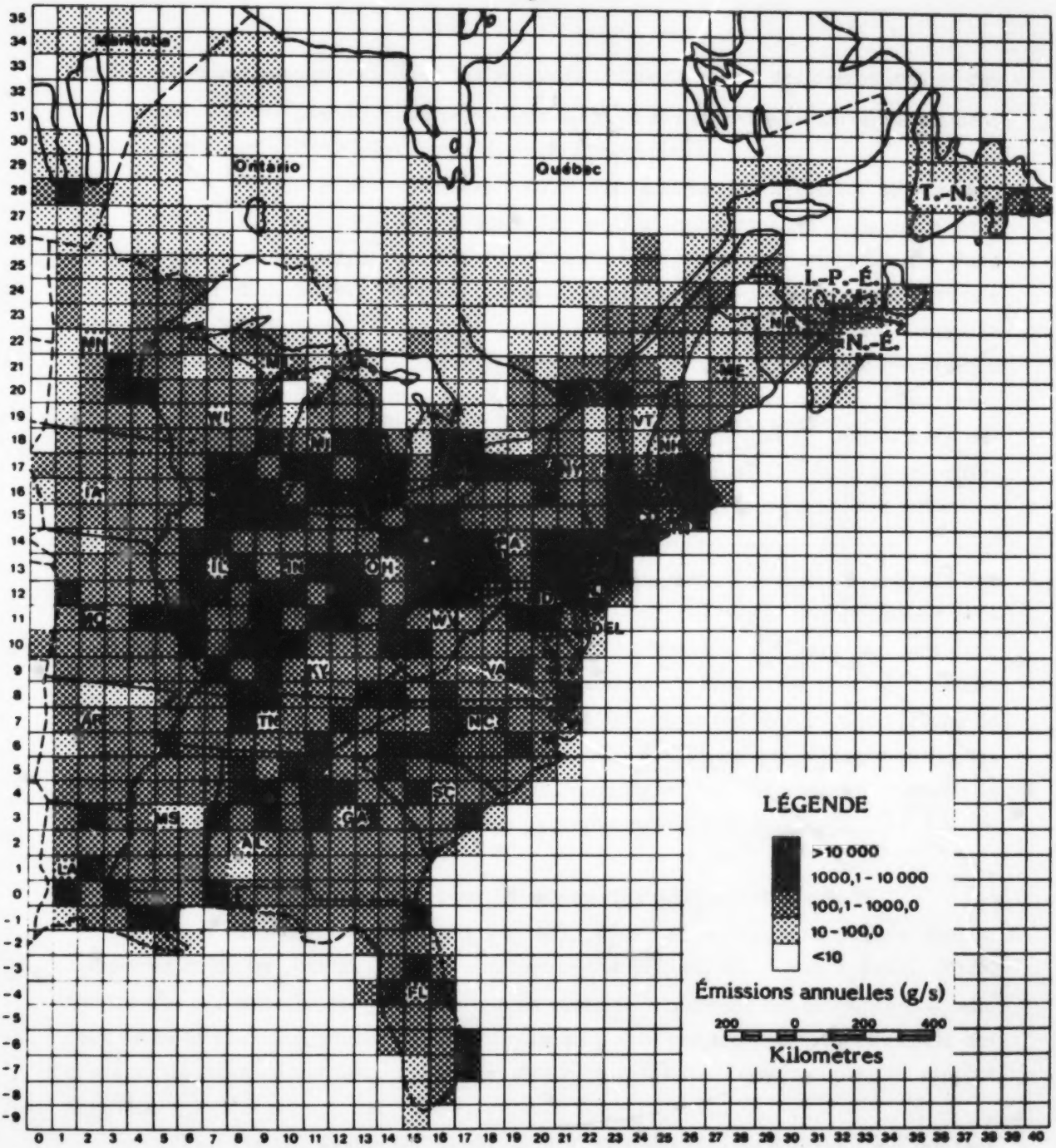


FIGURE 1 IMPORTANCE ET RÉPARTITION DES ÉMISSIONS D'OXYDE D'AZOTE (NO_x) DE L'EST DE L'AMÉRIQUE DU NORD (Altshuller et McBean, 1979)

Source: Les données sur les émissions des États-Unis proviennent de la base de données SURE II. Les données sur les émissions du Canada proviennent d'Environnement Canada.

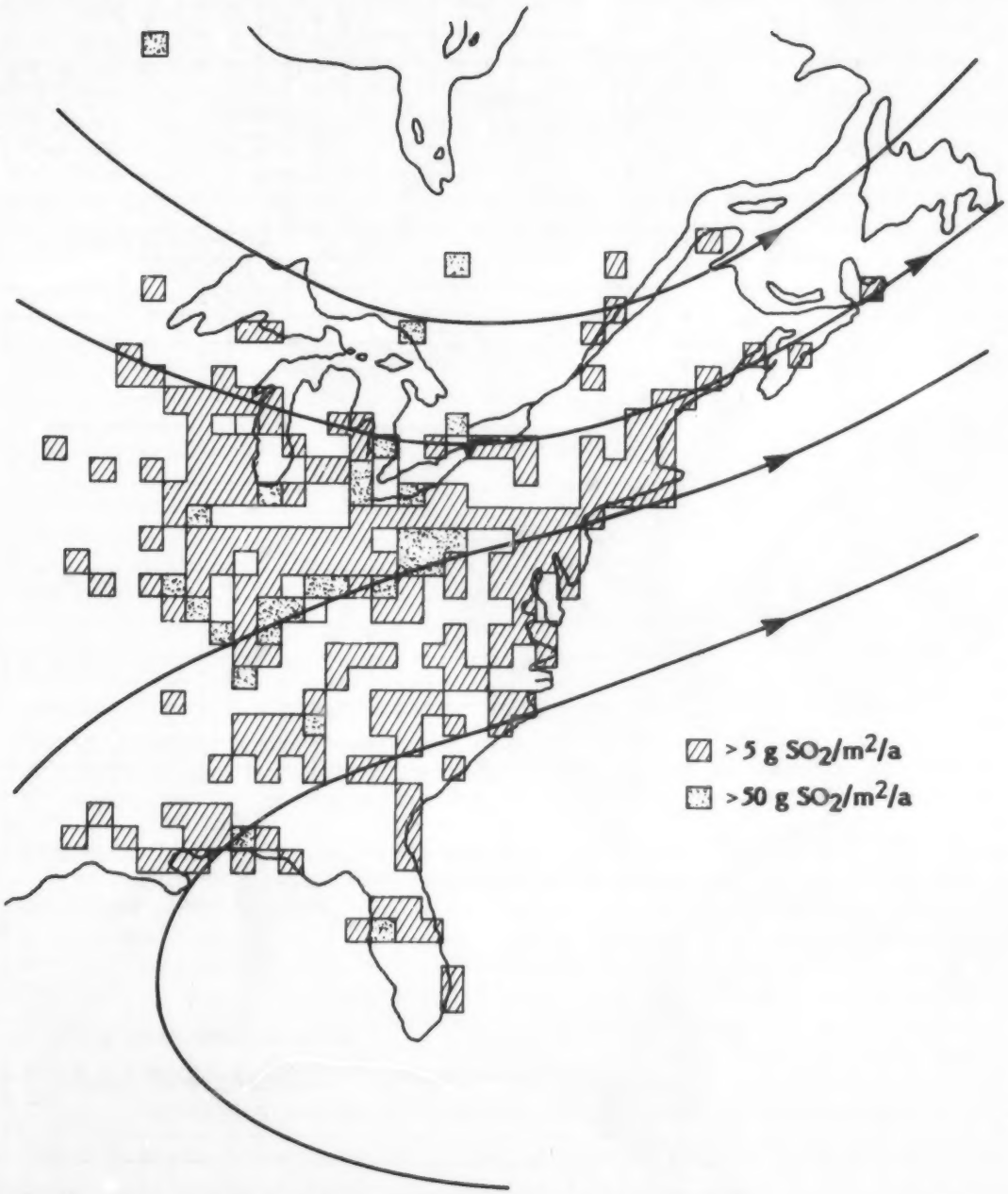


FIGURE 2 CIRCULATION GÉNÉRALE DE L'AIR À UNE HAUTEUR DE 1,5 km

conditions synoptiques particulières les polluants circulant autour des dépressions et des anticyclones puissent prendre différentes directions, ce qui entraîne un certain étalement des concentrations et des dépôts autour d'une source d'émission.

La turbulence atmosphérique résulte d'un écoulement irrégulier des couches d'air sur les plans horizontal et vertical. Sur le plan horizontal, la turbulence peut s'étendre sur tout le panache qui a alors tendance à serpenter de part et d'autre d'une trajectoire moyenne. Dans le cas d'une turbulence à plus petite échelle, le panache s'étale dans toutes les directions. Sur le plan vertical, la turbulence se manifeste jusqu'à la couche limite de frottement, de sorte que la hauteur du panache augmente à mesure que celui-ci s'éloigne de la source dans le sens du vent. Toutefois, la hauteur du panache est limitée par une couche d'air stable caractérisée par une inversion de température au-dessus de la zone de mélange créée par le frottement de l'air avec la surface terrestre. L'extension verticale de la zone de mélange constitue un important paramètre qui influe sur les concentrations de polluant et sur les vitesses de dépôt.

Les véhicules à moteur émettent des oxydes d'azote près du sol, tandis que l'industrie le rejette dans l'atmosphère à partir de grandes cheminées dont la hauteur peut atteindre plusieurs centaines de mètres. Les émissions des véhicules à moteur sont donc transportées sur des distances plus courtes que celles de l'industrie à cause du grand nombre d'impacts des particules qui se déposent en grande partie dans un rayon proche de la source d'émission avant qu'elles ne soient dispersées dans la zone de mélange. Enfin, les transformations chimiques et les effets des émissions des véhicules à moteur se rencontrent surtout localement, ce qui n'est pas toujours le cas de l'industrie.

Les transformations chimiques subies par les oxydes d'azote dans l'atmosphère

Les phénomènes chimiques des NO_x dans une atmosphère polluée sont si complexes qu'ils ne sont pas encore entièrement expliqués. La figure 3 (MOI, 1982b) montre que la chimie des NO_x est étroitement associée à la chimie des oxydants et à celle des oxydes de soufre. À gauche de cette figure on trouve une représentation du cycle des oxydants au cours duquel la concentration d'ozone à l'état stationnaire dépend du rapport NO_2/NO.

Le NO_2 fait également partie de la boucle centrale de réactions qui mettent en jeu des composés organiques volatils (COV). Le cycle NO_x-COV influe grandement sur les concentrations de OH et de HO_2. Le radical OH est un réactif important en phase gazeuse (c.-à-d. en dehors d'un nuage ou de la pluie) pour le SO_2 et les NO_x. En outre, le

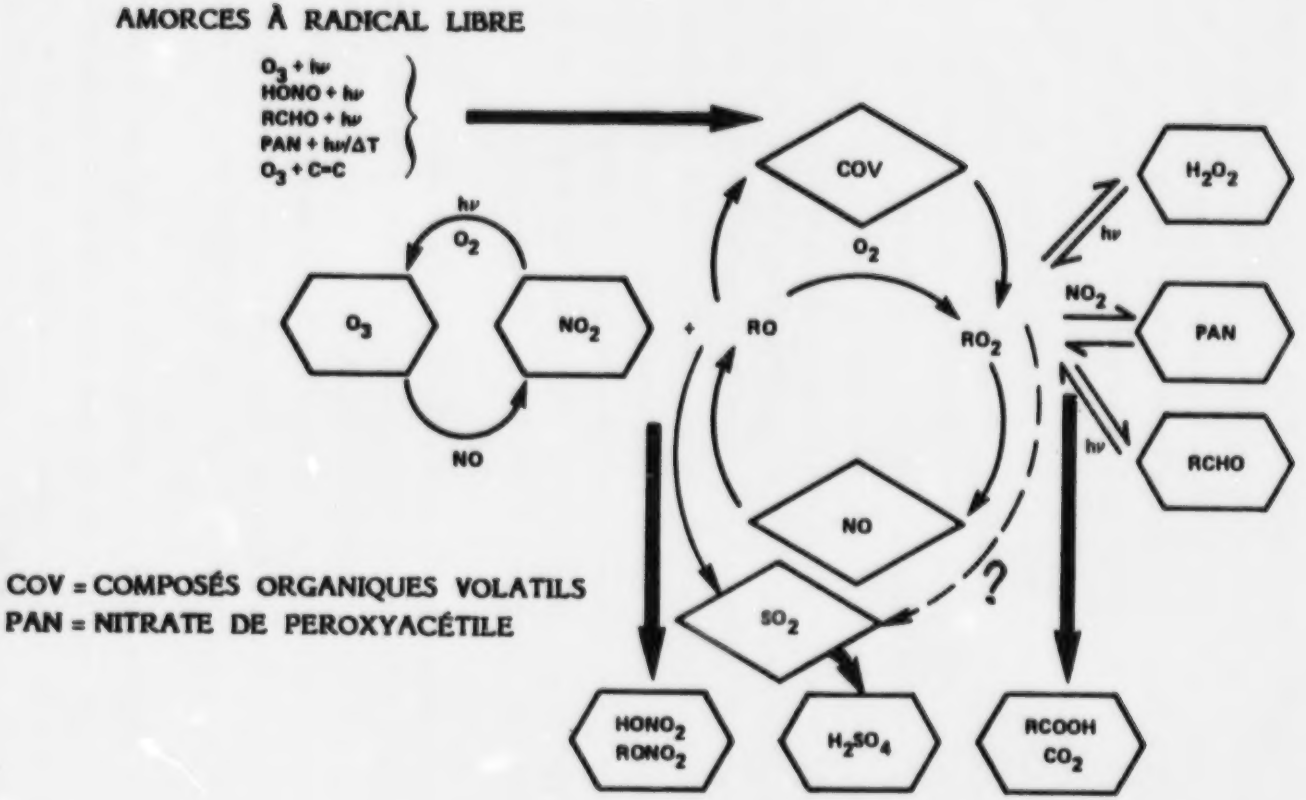


FIGURE 3 CYCLE DE PHOTO-OXYDATION DES POLLUANTS ATMOSPHÉRIQUES EN PHASE GAZEUSE (MOI, 1982b)

HO_2 est essentiel à la formation du peroxyde d'hydrogène (H_2O_2), un oxydant très puissant pour le SO_2 contenu dans les nuages ou les gouttelettes de pluie. Certains chimistes estiment que l'oxydation en phase liquide du SO_2 peut constituer le principal mécanisme conduisant à la formation de sulfates. Par conséquent, la chimie du NO_x-COV influe de façon appréciable sur l'oxydation du SO_2.

Enfin, comme on l'a mentionné ci-dessus, le NO_2 est oxydé en acide nitrique (HNO_3) par le radical OH. Sur une base annuelle, les nitrates contribuent à environ 35 p. 100 de l'acidité des précipitations, tandis que les sulfates contribuent au reste (Galloway et Dillon, 1983). Au Canada, au cours des mois d'hiver, la contribution des nitrates est d'environ 50 p. 100 dans les régions où l'on observe les plus fortes concentrations (données tirées du réseau canadien d'échantillonnage des précipitations du SEA, 1984).

Les dépôts des oxydes d'azote

Les dépôts en surface des polluants acides peuvent se produire par diffusion et par absorption soit en l'absence de précipitations (dépôts secs), ou avec les précipitations (dépôts humides). Dans ce dernier cas les dépôts peuvent être mesurés en prélevant un échantillon des précipitations ou, à l'aide d'un modèle, en multipliant les concentrations par un facteur appelé coefficient de balayage pour obtenir une valeur estimative. Il n'existe aucune méthode permettant de mesurer directement les dépôts secs; on estime généralement leur taux en supposant qu'il est proportionnel à la concentration ambiante. Étant donné les unités utilisées, la constante de proportionalité est appelée vitesse de dépôt sec.

Les valeurs du coefficient de balayage et des vitesses de dépôt pour les NO_x ne sont pas aussi bien connues que dans le cas des oxydes de soufre, et là encore ces paramètres peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur selon, en autres, la stabilité de l'atmosphère, le type de précipitation (neige ou pluie) et les propriétés de la surface (McMahon et Denison, 1979). Ainsi, il n'est pas encore possible d'élaborer des modèles pour prévoir les dépôts de NO_x et de nitrates.

Cependant, on a effectué des observations pour déterminer la configuration à l'échelle régionale des dépôts de nitrates avec les précipitations. Les résultats sont présentés à la figure 4 (MOI, 1982b). La configuration des dépôts humides a une forme allongée et orientée dans l'axe du sud-ouest et du nord-est, c'est-à-dire dans le sens de la circulation générale de la basse atmosphère. L'aire de dépôt maximal est située en aval

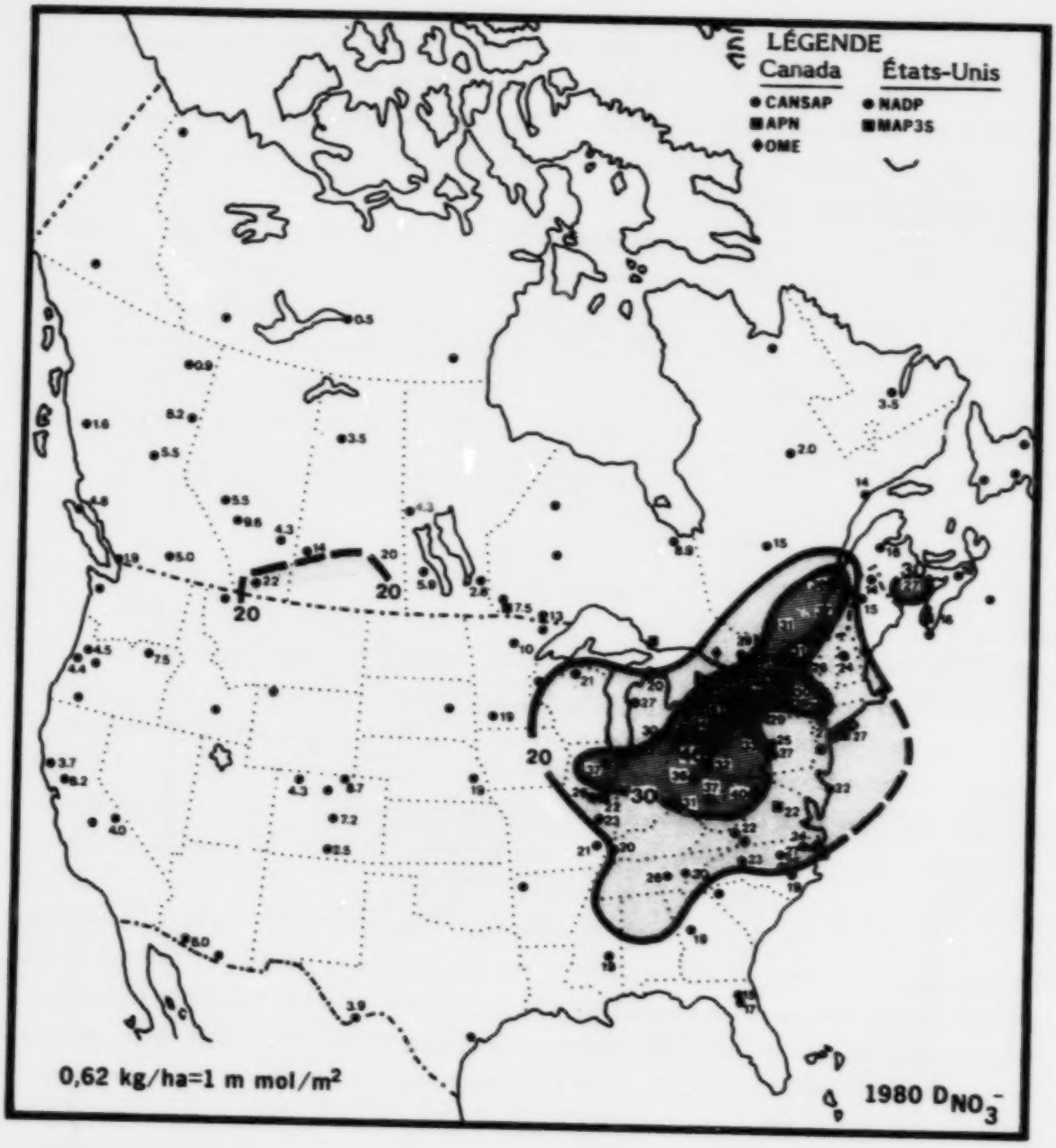


FIGURE 4 QUANTITÉ DE PRÉCIPITATIONS - MOYENNE PONDÉRÉE DES DÉPÔTS D'IONS NITRATE, 1980

des sources d'émission importantes du Mid West et englobe d'autres sources importantes de la région des Grands lacs inférieurs. Même si cette configuration a été lissée en raison de la faible densité des observations et de "l'étalement" possible des panaches lors du passage des dépressions et des anticyclones, on remarque que cette aire de dépôt maximal tend à s'étendre vers les états de New York et du New Jersey qui constituent une source d'émission importante. La relation entre la configuration des dépôts et celle correspondant aux émissions est si étroite que les variations intervenant au niveau des émissions de NO_X sont observées à proximité de leur source. Dans l'Est du Canada (MOI, 1982a), la fraction des NO_X qui entrent dans les dépôts humides, et qui proviennent des véhicules légers est évaluée à environ 26 p. 100. Comme les dépôts annuels de nitrates sont évalués à environ 35 p. 100 des dépôts acides totaux, la proportion attribuable aux véhicules légers est d'environ 9 p. 100, laquelle peut augmenter en hiver en même temps que la part des nitrates dans les dépôts totaux.

Les effets des variations des émissions de NO_X sur les concentrations dans l'atmosphère et sur les dépôts

Des modèles ont été élaborés permettant de simuler le transport à distance et les dépôts de composés sulfurés. Ces modèles ont pu prédire avec un succès mitigé la répartition sur une grande échelle des dépôts humides de soufre en Amérique du Nord. Malgré les formules simplifiées utilisées dans les modèles, comme celles qui décrivent les processus linéaires de transformation chimique et de dépôt, on a réussi à mettre au point des matrices sources-récepteurs pour relier les émissions de 40 régions aux dépôts humides de neuf points récepteurs (MOI, 1982b).

Certains chercheurs estiment que les modèles sont suffisamment perfectionnés pour que les matrices sources-récepteurs puissent distinguer l'influence des émissions des différentes sources sur les concentrations et les dépôts de soufre en un lieu donné, alors que des experts de la National Academy of Science des États-Unis croient qu'ils ne le sont pas. D'autres groupes de chercheurs croient que l'on peut établir à l'aide des modèles, des stratégies de lutte contre les émissions de soufre applicables à une grande région géographique (Streets et coll., 1983; Shaw et Young, 1983).

Des matrices sources-récepteurs pour les oxydes d'azote n'ont pas été réalisées parce que l'on ne possède pas assez de connaissances sur les taux de transformation chimique et de dépôt. Cependant on peut effectuer des prévisions qualitatives sur les résultats d'une réduction des émissions de NO_X:

a) La réduction des émissions de NO_x devrait entraîner une diminution de la formation et des dépôts d'acide nitrique. L'acide nitrique dans les masses d'air pollué se forme durant les 10 à 15 premières heures du transport, tandis que la formation d'acide sulfurique s'étale sur une période de plusieurs dizaines d'heures (Rodhe et coll., 1981; Calvert et Stockwell, 1983). Les dépôts d'ions nitrate représentés à la figure 4 semblent étroitement reliés à la répartition des sources de NO_x. La réduction des émissions de NO_x au Canada devrait entraîner une diminution des dépôts et de l'accumulation des nitrates dans le manteau nival. Ainsi, le "choc acide" se produisant au cours de la fonte des neiges serait moins intense, particulièrement dans les régions sensibles du point de vue écologique.

b) Comme on l'a mentionné ci-dessus, la concentration d'ozone à l'état stationnaire dépend du rapport NO_2/NO. Les effets d'une diminution des émissions de NO_x sur l'ozone dépendront donc, de l'ampleur des variations de ce rapport. À certains rapports COV/NO_2, la réduction des émissions de NO_x peut en fait accroître les concentrations d'ozone dans les régions urbaines (Innes, 1981). Cependant, sur le plan régional, la réduction des émissions de NO_x diminuera probablement les concentrations d'ozone dans les zones rurales situées en aval des sources d'émission (Singh, 1979).

c) Il est difficile de prévoir les effets d'une variation des émissions de NO_x sur la production et le dépôt des sulfates provenant de l'atmosphère en raison des relations complexes existant entre la chimie du soufre et celle de l'azote. Les SO_x et les NO_x sont oxydés en phase gazeuse par le radical OH; une réduction des émissions de NO_x entraînerait une diminution de la formation de radicaux OH et donc de la production de sulfates. D'autre part, une réduction des émissions de NO_x augmenterait les concentrations de HO_2 et de H_2O_2, un oxydant en phase liquide, ce qui accroîtrait le taux de formation des sulfates. De telles variations des émissions influeraient sur la zone de dépôt des sulfates plutôt que sur le dépôt en valeur absolue.

Références*

Altshuller, A.P. and McBean, G.A. (1979), The LRTAP Problem in North America: a preliminary overview. Report of the United States - Canada Research Consultation Group on the Long Range Transport of Air Pollutants.

Atmospheric Environment Service (AES), Environment Canada, CANSAP data (1984).

Calvert, J.G. and Stockwell, W.R. (1983), Acid generation in the Atmosphere by Gas-phase Chemistry. Env. Sc. Tech. 17, 428A-443A.

Galloway, J.N. and Peter J. Dillon (1983), Effects of Acid Deposition: The Importance of Nitrogen. In: Ecological Effects of Acid Deposition, National Swedish Environmental Protection Board, Stockholm, Sweden, Rept. PM 1636, pp. 145-160.

Innes, G. (1981), Effect of Nitrogen Oxide Emissions on Ozone Levels in Metropolitan Regions. Env. Sc. Tech., 15, 904.

McMahon, T.A. and Denison, P.J. (1979), Empirical Atmospheric Deposition Parameters - a survey. Atmos. Env. 13, 571-585.

MOI (1982a), Final Report of Work Group 3B on Emissions, Costs and Engineering Assessment, United States - Canada Memorandum of Intent on Trans-boundary Air Pollution.

MOI (1982b), Final Report of Work Group 2 on Atmospheric Sciences and Analysis, United States - Canada Memorandum of Intent on Transboundary Air Pollution.

Rodhe, H., Crutzen, P. and Vanderpol, A. (1981), Formation of Sulfuric and Nitric Acid During Long Range Transport. Tellus 33, 132-141.

Shaw, R.W. (1982), The Atmosphere as Delivery Vehicle and Reaction Chamber. Ann Arbor Science (in press).

Shaw, R.W. and Young, J.W.S. (1983), An Investigation of the Assumptions of Linear Chemistry and Super Position in LRTAP Models. Atmos. Env. (in press).

Singh, H.B. (1979), Survey of the Role of NO_x in Non-Urban Ozone Formation. Report 450/4-79-035, U.S. Environmental Protection Agency.

Streets, D.G. Rundson, D.A., and Shannon, J.D. (1983), Selected Strategies to Reduce Acid Deposition in the U.S. Env. Sc. Tech. 17, 474A-485A.

* Liste reproduite de l'anglais